



US005827445A

United States Patent [19]
Yoshida et al.

[11] **Patent Number:** **5,827,445**
[45] **Date of Patent:** **Oct. 27, 1998**

[54] **COMPOSITE MAGNETIC ARTICLE FOR ELECTROMAGNETIC INTERFERENCE SUPPRESSOR**

5,207,841 5/1993 Shigeta et al. 252/62.55

[75] Inventors: **Shigeyoshi Yoshida; Mitsuharu Sato; Eishu Sugawara; Yutaka Shimada**, all of Miyagi, Japan

FOREIGN PATENT DOCUMENTS

[73] Assignee: **Tokin Corporation**, Miyagi, Japan

667643 8/1995 European Pat. Off. .

[21] Appl. No.: **714,805**

1152152 2/1958 France .

[22] Filed: **Sep. 17, 1996**

1024647 2/1958 Germany .

[30] **Foreign Application Priority Data**

4-276002 10/1992 Japan .

Sep. 22, 1995 [JP] Japan 7-244096
Nov. 2, 1995 [JP] Japan 7-309961
Nov. 24, 1995 [JP] Japan 7-329597

7-212079 8/1995 Japan .

[51] Int. Cl.⁶ **H01Q 17/00; C03C 14/00**

2232165 12/1990 United Kingdom 252/62.55

[52] U.S. Cl. **252/62.54; 252/62.55;**

174/35 R

[58] Field of Search **252/62.54, 62.55;**

174/35 R

2257979 1/1993 United Kingdom 252/62.55

[56] **References Cited**

Primary Examiner—Melissa Bonner

Attorney, Agent, or Firm—Hopgood, Calimafde, Kalil &

Judlowe

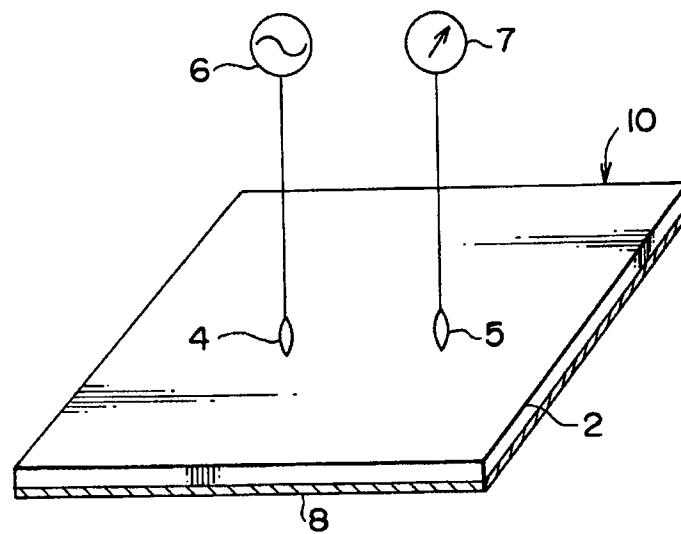


FIG. 1

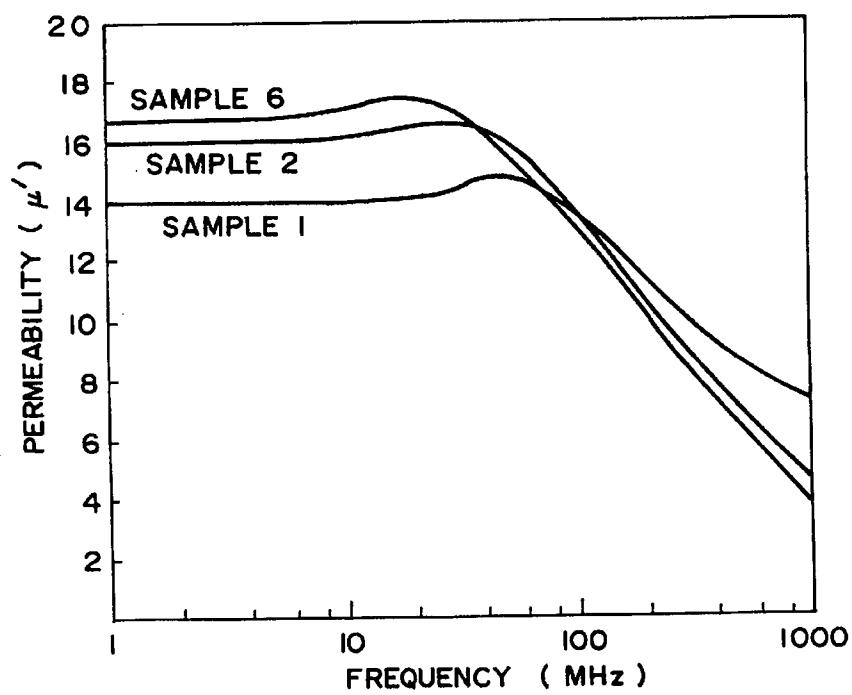


FIG. 2

**COMPOSITE MAGNETIC ARTICLE FOR
ELECTROMAGNETIC INTERFERENCE
SUPPRESSOR**

BACKGROUND OF THE INVENTION

This invention relates to a composite magnetic article and, in particular, to such a magnetic article having an improved complex magnetic permeability at a high frequency band adaptable for an electromagnetic interference suppressor.

Among high frequency electronic equipments which have been widely used, mobile communication equipments using a quasi-microwave frequency band have rapidly been expanded in practical use. In the mobile communication equipment, a portable wireless telephone set is eagerly required to be small in size and light in weight. In order to satisfy the requirement, printed circuit boards, circuit elements, wire cables connecting between modules are disposed closely adjacent to one another in the limited small space. Furthermore, it is also required that the signal processing rate is also increased, so that a frequency used is elevated. As a result, the electromagnetic interference is a serious problem against normal operation of those equipments, which interference is caused due to the electromagnetic coupling, the line-line coupling increased by the electromagnetic coupling, and noise radiation.

In order to suppress the electromagnetic interference, an electric conductive shield has conventionally been used to reflect undesired electromagnetic waves due to impedance mismatch of the conductor and the space.

The electric conductive shield is useful for shielding the undesired electromagnetic wave. However, the reflection of the undesired electromagnetic wave unfortunately aggravates electromagnetic coupling between a source of the undesired electromagnetic wave and other electric circuit elements.

In order to avoid the electromagnetic coupling due to the reflection of the undesired electromagnetic wave, it is effective to dispose, between the undesired electromagnetic wave source and the conductive shield, a soft magnetic substance having a large magnetic loss or a high imaginary part permeability μ'' .

Generally speaking, a magnetic substance having a high magnetic permeability is used as a magnetic core for an inductance element and is also called soft magnetic substance. On use in an AC magnetic field of a high frequency, the soft magnetic material has the complex magnetic permeability which is represented by $(\mu'-j\mu'')$. A real part permeability μ' relates to an inductance and an imaginary part permeability μ'' relates to a magnetic energy loss or a magnetic energy absorption. When the frequency becomes high, the real part permeability μ' is lowered but the imaginary part permeability μ'' is increased. Furthermore, the imaginary part permeability μ'' often has one or more peaks at different frequency points on the frequency axis. This phenomenon is known as a magnetic resonance of the soft magnetic substance. The frequency at which the peak is present is referred to as a magnetic resonance frequency. Moreover, a thickness d of the soft magnetic substance is reversely proportional to the imaginary part permeability μ'' in a high frequency range where the imaginary part permeability μ'' is larger than the real part permeability μ' .

On the other hand, the undesired electromagnetic wave usually has a large number of frequency components which are within a wide frequency range. Accordingly, the soft magnetic substance is required to have a high imaginary part permeability μ'' over a wide frequency range for absorption of the undesired electromagnetic wave.

In JP-A-7 212079 (Reference I), the present inventors already proposed an electromagnetic interference suppressor using soft magnetic powder having the shape magnetic anisotropy. The magnetic powder has the high magnetic loss over a wide frequency range from several tens megahertz to several gigahertz. The magnetic loss is supposed to occur due to the magnetic resonance.

Electromagnetic interference suppressor proposed in Reference I uses flaky or flat soft magnetic powder of an alloy metal. The powder has an anisotropic magnetic field H_k higher than another spherical powder of the same alloy metal. This is based on the magnetic anisotropy due to the flat or flaky shape, that is, a demagnetizing factor Nd . The demagnetizing factor Nd is determined by a shape of a powder particle and an aspect ratio. Accordingly, the magnetic resonance frequency is variable by changing the particle shape and the aspect ratio. However, the demagnetizing factor Nd is approximately saturated when the aspect ratio exceeds 10. Therefore, the variable range of the magnetic resonance frequency is limited.

On the other hand, the eddy current loss is known as a problem against improvement of the high frequency response of the soft magnetic materials. That is, the magnetic permeability is deteriorated by the eddy current occurring at a frequency lower than a frequency at which the magnetic resonance occurs.

In order to resolve the problem, a known approach is to use thin films of the soft magnetic material taking the skin effect into consideration. An example is a layered product which comprises soft magnetic thin films and dielectric thin films alternately overlaid or stacked one after another.

However, the layered product has another problem that the displacement current flows through the dielectric thin films in the product. The displacement current deteriorates the magnetic permeability. The displacement current is dependent on the size of the magnetic films in the layered product. This teaches that use of the soft magnetic powder resolves the problem of the dielectric current.

SUMMARY OF THE INVENTION

Accordingly, it is an object of the present invention to provide a composite magnetic article for an electromagnetic interference suppressor having a high imaginary part permeability μ'' over a wide high frequency range and variable or adjustable magnetic resonance frequencies within a broadened frequency range.

Considering the stress strain of the soft magnetic powder caused at the working from the spherical powder particles into the flaky or flat powder particles, the present invention attempts to use of soft magnetic powder having a positive or negative magnetostriction λ which is not zero so as to employ the direction of the magnetic anisotropy caused by the strain.

Further, the present invention also attempts to change the residual strain by annealing so as to bring about magnetic resonance frequencies over a broadened frequency range.

It is a particular object of this invention to provide a composite magnetic article comprising soft magnetic powder which has a thickness thinner than the skin depth, a high aspect ratio so as to obtain the demagnetizing factor of $Nd=1$, and a surface oxide layer.

According to the present invention, a composite magnetic article is obtained, which comprises: soft magnetic powder of at least one soft magnetic composition having a magnetostriction constant, each of particles of the powder being

flaky; and organic binding agent binding the soft magnetic powder dispersed therein.

The magnetostriction constant may be positive or negative.

The soft magnetic powder is preferably one as annealed after being worked flaky.

The soft magnetic flaky particles preferably have an average thickness less than a skin depth within which the skin effect occurs at a frequency band for which the composite magnetic article is used.

The soft magnetic flaky particles are preferably oriented in a direction in the organic binding agent.

Each of the soft magnetic flaky particles preferably has an oxide outer layer.

The oxide outer layer can be formed by subjecting the powder to a surface oxidation by an oxygen containing gas through a vapor phase slow oxidization method or a liquid phase slow oxidization method.

The soft magnetic powder is preferably made of two or more compositions having different magnetostriction constants.

The soft magnetic powder preferably comprises two or more kinds of flaky particles which have been annealed at different annealing conditions.

According to the present invention, a method is provided for producing a composite magnetic article comprising a soft magnetic powder bound by an organic binding agent. The method comprises steps of: preparing a flaky soft magnetic powder by working soft magnetic powder into flaky ones; annealing the flaky soft magnetic powder so as to remove residual strain caused due to the working; mixing the annealed flaky soft magnetic powder with a liquid of the binding agent and a solvent; and shaping the mixture into a shape of the article.

The method may further comprise a step of, after the annealing step before the mixing step, forming an oxide outer layer of each particle of the flaky soft magnetic powder by subjecting the powder to a surface oxidation by an oxygen containing gas through a vapor phase slow oxidization method or a liquid phase slow oxidization method.

Alternatively, the oxide outer layer forming step may be performed after the preparing step but before the annealing step.

In the preparing step, working stress applied to the powder is preferably controlled to vary the residual strain so as to adjust an external frequency of a complex magnetic permeability of the resultant composite magnetic article.

In the annealing step, the annealing condition is preferably controlled to vary the residual strain so as to adjust an external frequency of a complex magnetic permeability of the resultant composite magnetic article.

BRIEF DESCRIPTION OF THE DRAWINGS

FIG. 1 is a schematic view of an evaluating system for use in evaluation of a characteristic of the electromagnetic interference suppressing body; and

FIG. 2 is a graphic view illustrating magnetic permeability frequency responses of samples of the present invention and comparative sample.

DESCRIPTION OF PREFERRED EMBODIMENTS

In embodiments of the present invention, Fe—Al—Si alloy ("Sendust" which is a registered trademark), Fe—Ni

alloy (Permalloy), amorphous alloy or other metallic soft magnetic materials can be used as a start material.

The start material is subjected to grinding, rolling, and tearing to produce powder of flat or flaky particles. In this way, it is important that the flaky particles have an average thickness smaller than a dimension of a depth within which the skin effect occurs and that the flaky powder has an aspect ratio more than 10 in order to make the demagnetizing factor Nd about 1.

The depth will be referred to as the "skin depth" δ , hereinafter. The skin depth δ is given by:

$$\delta = (\rho / \mu_0 f)^{1/2},$$

where ρ , μ_0 , and f represent resistivity, magnetic permeability, and frequency, respectively. It is noted that the skin depth δ varies in dependence on the frequency f at which the soft magnetic material is used. However, the desired skin depth and the aspect ratio can readily be realized by specifying the average particle size of the powder of the start material.

For grinding, rolling and tearing of the start material, a ball mill, an attritor, a pin mill can preferably be used. Other apparatus can be used therefor which could produce the powder of the thickness and the aspect ratio as described above, and taking the residual strain caused due to working by the apparatus into account.

If the start material has a positive magnetostriction constant λ , shape magnetic anisotropy and strain magnetic anisotropy are present in the common direction by the rolling and tearing. Therefore, each of worked particles has a total anisotropic magnetic field due to both anisotropy. Accordingly, the anisotropic magnetic field is higher in field level and in the magnetic resonance frequency than that in use of a magnetic material with no magnetostriction ($\lambda=0$) as the start material.

The residual strain caused by the flattening treatment can be relaxed by an appropriate annealing treatment. Therefore, the soft magnetic powder as being annealed has a magnetic resonance at a frequency f_r which is dependent on the annealing condition. The magnetic resonance frequency f_r is lower after the annealing than before annealing and is higher than that in use of a magnetic material with no magnetostriction ($\lambda=0$). Therefore, the magnetic resonance frequency can be adjusted by control of the annealing condition. If the start material has a negative magnetostriction constant ($\lambda<0$), the direction of the strain magnetic anisotropy due to the residual strain is perpendicular to that of the shape magnetic anisotropy, so that the anisotropic magnetic field is relatively low with a low magnetic resonance frequency in comparison with the magnetic material with no magnetostriction ($\lambda=0$).

Therefore, by combination of the shape magnetic anisotropy, the positive or negative magnetostriction constant, and the annealing condition, it is possible to provide various composite magnetic articles having different magnetic resonance frequencies within a relatively wide frequency band.

In the composite magnetic article of the present invention, the soft magnetic powder is provided with a dielectric outer surface layer so as to electrically isolate each powder particle from adjacent powder particles even in high powder loaded density. The dielectric outer surface layer is composed of a metal oxide which is formed by surface oxidation of metallic magnetic powder. In the magnetic powder of, for example, Fe—Al—Si alloy, the oxide layer is mainly composed of AlO_x and SiO_x .

For surface oxidation of the metallic magnetic powder, known liquid phase slow oxidization method and gas phase slow oxidization method can preferably and alternatively be used, considering easy control, stability and safety. In the both methods, nitrogen-oxygen mixture gas with a controlled oxygen partial pressure is introduced into an organic solvent of hydrocarbon in the former method but into an inert gas in the latter method.

The surface oxidation and the annealing can be carried out in the order as described, but they may be in the reversed order, and can be performed simultaneously.

As the organic binder or binding agent used in the present invention, there are recommended polyester resin, polyethylene resin, polyvinyl chloride resin, polyvinyl butyral resin, polyurethane resin, cellulose resin, ABS resin, nitrile-butadiene rubber, styrene-butadiene rubber, epoxy resin, phenol resin, amide resin, imide resin, or copolymers thereof.

In order to produce the composite magnetic article, the flaky magnetic powder is mixed with and dispersed in the organic binder and formed into a desired article shape. The mixing and shaping are carried out by use of proper apparatus selected from known mixing and shaping apparatus.

In the composite magnetic article, the magnetic powder is oriented in a direction. The orientation can be performed by use of a shearing force or a magnetic field.

Now, several examples will be demonstrated below.

At first, a plurality of start powder samples of Fe—Ni alloy and Fe—Al—Si alloy which samples have different magnetostriction constants were prepared by the water atomizing method. The start powder samples were subjected to grinding, rolling and tearing processes at different conditions, respectively, then subjected to the liquid phase slow oxidation treatment where each of the samples was agitated about eight hours in a hydrocarbon organic solvent into which a nitrogen-oxygen mixture gas with 35% oxygen partial pressure was introduced, and thereafter, was subjected to classification. Thus, a plurality of sample powders were obtained which have different anisotropic magnetic fields H_k.

The resultant powder samples were confirmed to have oxide film on the outer surface of each powder particle, by surface analysis of each particle.

In use of the gas phase slow oxidization method where the sample powder was put in an inert gas into which a nitrogen-oxygen mixture gas with 20% oxygen partial pressure was introduced, formation of oxide film on the outer surface of the sample powder was also confirmed.

Then, composite magnetic articles were produced using the powder samples and were subjected to measurement of the magnetic permeability frequency (μ -f) response and examination of the electromagnetic interference suppressing ability.

In measurement of the μ -f response, a test ring of the composite magnetic article of the present invention was prepared and was inserted into a test fixture having a one-turn coil. The impedances of the coil were measured at various frequencies of the AC current flowing through the coil to obtain μ' and μ'' .

The examination of the electromagnetic interference suppressing ability was carried out by use of the evaluating system shown in FIG. 1. A test sample 2 of the composite magnetic article of the present invention was a square plate of 20 cm×20 cm with a thickness of 2 mm. The test plate 2 was backed with a copper plate 8 to form a test piece of the electromagnetic interference suppressor. An electromagnetic wave generator 6 and a network analyzer 7 were connected

to transmitting and receiving loop antennas 4 and 5, each having a fine loop of a diameter of 1.5 mm, respectively. The electromagnetic wave was emitted by the generator 6 through the antenna 4, and the electromagnetic field strength received at the receiving antenna 5 was measured by the analyzer 7.

EXAMPLE 1

A soft magnetic paste was prepared which had a composition as follows:

Flat soft magnetic powder A	95 weight parts
Composition: Fe—Al—Si alloy	
Average particle diameter: $\phi 20 \mu\text{m} \times 0.3 \mu\text{m}(t)$	
Magnetostriction: +0.72	
Annealing: No	
Polyurethane resin:	8 weight parts
Hardening Agent (Isocyanate compound)	2 weight parts
Solvent (Mixture of cyclohexanone and toluene)	40 weight parts

It is noted here that the magnetostriction is given by $(dl/l) \times 10^{-6}$. The representation of "dl" is a strain of a size of "l" at a magnetic field of H=200 oersted. This is also similar in samples 2, 4, 5, and 6 hereinafter.

From the paste, a film sample 1 was formed by a doctor blade process followed by hot-pressing and then curing at 85°C. for 24 hours.

Film sample 1 was analysed by use of a scanning electron microscope and it was thereby confirmed that the directions of magnetic particle alignment are in the surface of the sample.

EXAMPLE 2

Another soft magnetic paste was prepared which had a composition as follows:

Flat soft magnetic powder B	95 weight parts
Composition: Fe—Al—Si alloy	
Average particle diameter: $\phi 20 \mu\text{m} \times 0.3 \mu\text{m}(t)$	
Magnetostriction: +0.72	
Annealing: 650°C., 2 hours	
Polyurethane resin:	8 weight parts
Hardening Agent (Isocyanate compound)	2 weight parts
Solvent (Mixture of cyclohexanone and toluene)	40 weight parts

From the paste, a film sample 2 was formed by a doctor blade process followed by hot-pressing and then curing at 85°C. for 24 hours.

Film sample 2 was analysed by use of a scanning electron microscope and it was thereby confirmed that the directions of magnetic particle alignment are in the surface of the sample.

EXAMPLE 3

Another soft magnetic paste was prepared which had a composition as follows:

Flat soft magnetic powder C	95 weight parts
Composition: Fe—Ni alloy	
Average particle diameter: $\phi 30 \mu\text{m} \times 0.4 \mu\text{m}(t)$	
Magnetostriction: -1.03	
Annealing: No	

-continued

Polyurethane resin:	8 weight parts
Hardening Agent (Isocyanate compound)	2 weight parts
Solvent (Mixture of cyclohexanone and toluene)	40 weight parts

From the paste, a film sample 3 was formed by a doctor blade process followed by hot-pressing and then curing at 85° C. for 24 hours.

Film sample 3 was analysed by use of a scanning electron microscope and it was thereby confirmed that the directions of magnetic particle alignment are in the surface of the sample.

EXAMPLE 4

Another soft magnetic paste was prepared which had a composition as follows:

Flat soft magnetic powder A Composition: Fe—Al—Si alloy Average particle diameter: $\phi 2 \mu\text{m} \times 0.3 \mu\text{m}(t)$ Magnetostriction: 0.72 Annealing: No	60 weight parts
Flat soft magnetic powder B Composition: Fe—Al—Si alloy Average particle diameter: $\phi 20 \mu\text{m} \times 0.3 \mu\text{m}(t)$ Magnetostriction: +0.72 Annealing: 650° C., 2 hours	35 weight parts
Polyurethane resin: Hardening Agent (Isocyanate compound) Solvent (Mixture of cyclohexanone and toluene)	8 weight parts 2 weight parts 40 weight parts

From the paste, a film sample S4 was formed in the similar manner as in EXAMPLE 1.

Film sample 4 was similarly confirmed that the directions of magnetic particle alignment are in the surface of the sample.

EXAMPLE 5

Another soft magnetic paste was prepared which had a composition as follows:

Spherical soft magnetic powder D Composition: Fe—Al—Si alloy Average particle diameter: $\phi 15 \mu\text{m}$ Polyurethane resin: Hardening Agent (Isocyanate compound) Solvent (Mixture of cyclohexanone and toluene)	95 weight parts 8 weight parts 2 weight parts 40 weight parts
--	--

From the paste, a comparative film sample 5 was formed in the similar manner as in EXAMPLE 1.

Film sample 4 was similarly confirmed by use of the scanning electron microscope that the directions of magnetic particle alignment are isotropic.

EXAMPLE 6

Another soft magnetic paste was prepared which had a composition as follows:

Flat soft magnetic powder E Composition: Fe—Al—Si alloy Average particle diameter: $\phi 20 \mu\text{m} \times 0.4 \mu\text{m}(t)$	95 weight parts
--	-----------------

-continued

Magnetostriction: 0 Polyurethane resin: Hardening Agent (Isocyanate compound) Solvent (Mixture of cyclohexanone and toluene)	8 weight parts 2 weight parts 40 weight parts
--	---

From the paste, a comparative film sample 6 was formed in the similar manner as in EXAMPLE 1.

Comparative film sample 6 was confirmed by use of a scanning electron microscope that the directions of magnetic particle alignment is in the surface of the sample.

Table 1 shows a real magnetic permeability μ' and a magnetic resonance frequency fr of each of the samples 1–6.

TABLE 1

	20	Powder Loaded Rate	*Real Magnetic Permeability μ'	Magnetic Resonance Frequency fr
Sample 1	30%	14	50 MHz	
Sample 2	29%	16	30 MHz	
Sample 3	33%	19	20 MHz	
Comparative	53%	10	**10 MHz	
Sample 5	31%	17	25 MHz	
Comparative				
Sample 6				

30 * μ' at f = 10 MHz

**Magnetic resonance is unclear

FIG. 2 shows μ -f characteristic curves of

As will be understood from FIG. 2, sample 1, in which the magnetic powder having the positive magnetostriction is used, has the highest magnetic resonance frequency fr, while sample 6, in which the magnetic powder having a magnetostriction of zero, has the highest real magnetic permeability. Sample 2 uses the magnetic powder which is similar to that in sample 1 but is subjected to the annealing. As regards the magnetic resonance frequency fr and the real magnetic permeability μ' , sample 2 has intermediate values between those in samples 1 and 6.

45 On the other hand, it is noted from Table 1 that the magnetic resonance frequency fr of sample 3 having a negative magnetostriction is lower than that of sample 6, but the real magnetic permeability μ' of sample 3 is higher than that of sample 6.

50 Comparative sample 5 using spherical magnetic powder is quite low in real magnetic permeability μ' , comparing with any other samples 1–4 and comparative sample 6.

55 It will be understood from the examples as described above that the magnetic permeability of a composite magnetic article can be controlled over a broad frequency band by use of the magnetic powder having the magnetostriction of zero and by changing the residual strain of the powder by annealing. In addition, it is noted that the composite magnetic article can be provided with a high magnetic permeability at a high frequency region by specifying a thickness of the magnetic particles of the powder and by forming a dielectric cover layer on an outer surface of the magnetic powder.

65 Table 2 shows various data of sample 4 and comparative sample 5.

TABLE 2

	Sample 4	Sample 5
Powder Loaded Rate	31%	53%
Surface Resistance	$9 \times 10^7 \Omega$	$4 \times 10^7 \Omega$
μ'' Distribution	broad	narrow
Attenuation	800 MHz 1.5 GHz	6.5 dB 7.7 dB 3.8 dB 4.3 dB

In Table 2, the surface resistance values were measured by the ASTM-D-257 method, μ'' distribution is based on the mutual comparison of samples 4 and 5, and attenuation values were based on the value of copper as the reference and represent the electromagnetic interference suppressing effect.

It will be understood from Table 2 that both of sample 4 and comparative sample 5 have surface resistance values of 10^7 – $10^8 \Omega$. This means that the composite magnetic article is made non-conductive by use of magnetic powder oxidized at at least the surface. Thus, the article can suppress the surface reflection of the electromagnetic wave which is usually present by an impedance mismatch in use of a conductor or a magnetic metallic bulk. Further, it will be noted that sample 4 is lower than comparative sample 5 in the powder loading rate but is superior to in the electromagnetic interference suppressing effect. This means that the broad μ'' distribution is effective for the electromagnetic interference suppressing effect.

What is claimed is:

1. A composite article formed of soft magnetic powder in which particles thereof comprise at least one soft metal composition having a magnetostriction constant which is either positive or negative, said particles being in the form of flakes dispersed through an organic binder, said magnetic flakes having an average thickness of less than a skin depth within which a skin effect occurs at a frequency band at which said composite magnetic article is used.

2. The composite metal article as in claim 1, wherein said soft magnetic powder is annealed after being worked to form flakes.

3. A composite magnetic article as claimed in claim 1, wherein said soft magnetic powder is comprised of two or more compositions having different magnetostriction constants.

4. A composite magnetic article as claimed in claim 3, wherein said soft magnetic particles are oriented in a direction in said organic binder.

5. The composite magnetic article as in claim 4, wherein each of the soft magnetic flakes has an oxide outer layer.

6. The composite magnetic article as claimed in claim 5, wherein said oxide layer is formed by oxidation.

7. The composite metal article as in claim 6, wherein the oxidation is carried out in an oxygen-containing gas or a liquid.

8. A composite magnetic article as in claim 7, wherein said article is electrically non-conductive.

9. The composite magnetic article as claimed in claim 8, wherein said soft magnetic powder is comprised of two or more kinds of powder flakes which have been annealed under different annealing conditions.

10. A method for producing a composite magnetic article from a soft magnetic powder comprising at least one soft metal composition dispersed as particles through an organic binder, said method comprising:

working particles of said soft magnetic powder and forming flakes thereof;

annealing said flakes to remove residual strain produced during working;

mixing said annealed flakes of soft magnetic powder with a liquid comprising said organic binding agent and a solvent to form a mixture thereof; and

shaping said mixture into an article.

11. The method as in claim 10, wherein following the annealing of said flakes, the flakes are subjected to surface oxidation by an oxidizing gas or by contact with an oxidizing liquid.

12. The method as claimed in claim 10, wherein working stress applied to said powder to produce flakes is controlled to vary the residual strain so as to adjust an external frequency of complex magnetic permeability of the resultant composite magnetic article.

13. The method as claimed in claim 10, wherein the annealing condition of the powder is controlled to vary the residual strain to enable the adjustment of external frequency of a complex magnetic permeability of the composite magnetic article.

14. An electromagnetic interference suppressing body formed of said composite magnetic article as claimed in claim 1.

* * * * *

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-93034

(43)公開日 平成9年(1997)4月4日

(51)Int.Cl.⁶
H 01 Q 17/00
H 01 F 1/113
H 05 K 9/00

識別記号

府内整理番号

F I
H 01 Q 17/00
H 05 K 9/00
H 01 F 1/113

技術表示箇所

M

審査請求 未請求 請求項の数15 O.L (全 17 頁)

(21)出願番号

特願平7-244096

(22)出願日

平成7年(1995)9月22日

(71)出願人 000134257

株式会社トーキン

宮城県仙台市太白区郡山6丁目7番1号

(72)発明者 ▲吉▼田 栄▲吉▼

宮城県仙台市太白区郡山6丁目7番1号

株式会社トーキン内

(72)発明者 佐藤 光晴

宮城県仙台市太白区郡山6丁目7番1号

株式会社トーキン内

(72)発明者 菅原 英州

宮城県仙台市太白区郡山6丁目7番1号

株式会社トーキン内

(74)代理人 弁理士 後藤 洋介 (外3名)

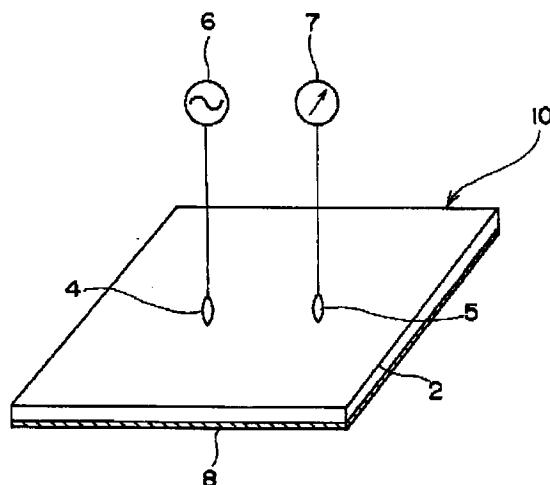
最終頁に続く

(54)【発明の名称】複合磁性体及びその製造方法ならびに電磁干渉抑制体

(57)【要約】

【課題】渦電流による透磁率特性の劣化を抑止し高い実部透磁率を実現しつつ、高周波透磁率特性を広い範囲で制御することの出来る複合磁性体及びその製造方法、ならびに移動体通信機器をはじめとする高周波電子機器類内部での電磁波の干渉抑制に有効な薄厚の電磁干渉抑制体を提供すること。

【解決手段】磁歪定数 λ がゼロでない値をもち扁平状に加工された軟磁性体粉末であって、加工後のその平均厚さが所望の複合磁性体の使用周波数における表皮深さよりも小さく、誘電体層として少なくともその表面に酸化膜層をもつ軟磁性体粉末を用い、更に焼鈍処理を組み合わせることで高周波透磁率特性を広い範囲で制御可能とした複合磁性体を提供し、更に残留歪み量の異なる複数の前記複合磁性体を用いることで高周波電子機器類内部での電磁波の干渉抑制に有効な電磁干渉抑制体を提供する。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 磁歪定数 λ が正の組成を有し偏平状に加工された軟磁性体粉末と、有機結合剤からなることを特徴とする複合磁性体。

【請求項 2】 磁歪定数 λ が負の組成を有し偏平状に加工された軟磁性体粉末と、有機結合剤からなることを特徴とする複合磁性体。

【請求項 3】 請求項 1 又は請求項 2 に記載のいずれかの複合磁性体において、

前記軟磁性体粉末は、前記偏平状に加工された後、加工により生じる残留歪み緩和化の為の焼鈍処理が施されたものであることを特徴とする複合磁性体。

【請求項 4】 請求項 1 乃至請求項 3 に記載のいずれかの複合磁性体において、

前記偏平状に加工された軟磁性体粉末の平均の厚さは、該複合磁性体の使用周波数における表皮深さ δ よりも小さいことを特徴とする複合磁性体。

【請求項 5】 請求項 1 乃至請求項 4 に記載のいずれかの複合磁性体において、

前記偏平状に加工された軟磁性体粉末は、該複合磁性体中において、配向配列されていることを特徴とする複合磁性体。

【請求項 6】 請求項 1 乃至請求項 5 に記載のいずれかの複合磁性体において、

前記軟磁性体粉末は、少なくともその表面に酸化物層を有することを特徴とする複合磁性体。

【請求項 7】 請求項 6 に記載の複合磁性体において、前記少なくともその表面に酸化物層を有する軟磁性体粉末は、該酸化物層を気相中除酸法又は液相中除酸法により酸素含有混合ガスにて表面酸化することにより形成されたものであることを特徴とする複合磁性体。

【請求項 8】 請求項 6 又は請求項 7 に記載のいずれかの複合磁性体において、

前記軟磁性体粉末と、前記有機結合剤からなり、且つ、電気的に非良導性であることを特徴とする複合磁性体。

【請求項 9】 異なる大きさの及び／又は異なる符号の磁歪定数 λ を有する少なくとも二つの偏平状軟磁性体粉末と有機結合剤からなる複合磁性体。

【請求項 10】 焼鈍処理条件の異なる少なくとも 2 つの偏平状軟磁性体粉末と有機結合剤からなる複合磁性体。

【請求項 11】 軟磁性体と有機結合剤からなる複合磁性体の製造方法に関し、

前記軟磁性体粉末を偏平状に加工し、該加工により前記軟磁性体粉末に生じる残留歪み緩和化の為の焼鈍処理を施し、

該焼鈍処理を施された前記軟磁性体粉末の少なくとも表面に気相中除酸法又は液相中除酸法により酸素含有ガスにて表面酸化することで酸化物層を形成することを特

徴とする複合磁性体の製造方法。

【請求項 12】 軟磁性体と有機結合剤からなる複合磁性体の製造方法に関し、

前記軟磁性体粉末を偏平状に加工し、

前記軟磁性体粉末の少なくとも表面に気相中除酸法又は液相中除酸法により酸素含有ガスにて表面酸化をすることで酸化物層を形成し、

該酸化物層を形成された前記軟磁性体粉末に前記偏平状に加工したことにより生じる残留歪み緩和化の為の焼鈍処理を施すことを特徴とする複合磁性体の製造方法。

【請求項 13】 軟磁性体と有機結合剤からなる複合磁性体の製造方法に関し、

前記軟磁性体粉末を偏平状に加工し、

該加工された前記軟磁性体粉末に、前記加工により前記軟磁性体に生じる残留歪み緩和化の為の焼鈍処理と、前記軟磁性体粉末の少なくとも表面に気相中除酸法により酸素含有ガスにて表面酸化をすることで酸化物層を形成する処理とを同時に行うことを行なうことを特徴とする複合磁性体の製造方法。

【請求項 14】 請求項 1 乃至請求項 13 に記載のいずれかの複合磁性体の製造方法に関し、

前記軟磁性体粉末を偏平状に加工する際に、前記軟磁性体に加わる歪み量、あるいは前記焼鈍処理の条件を変えることにより該複合磁性体の複素透磁率の周辺周波数を制御することを特徴とする複合磁性体の製造方法。

【請求項 15】 請求項 1 乃至請求項 10 に記載のいずれかの複合磁性体をその構成要素として有する電磁干渉抑制体であって、前記複合磁性体の互いに異なる大きさの残留歪みに相応して相異なる周波数領域に出現する複数の磁気共鳴の内、最も低い周波数領域に現れる磁気共鳴が、所望する電磁干渉抑制周波数帯域の下限よりも低い周波数領域にあることを特徴とする電磁干渉抑制体。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、高周波領域に於いて優れた複素透磁率特性を有する複合磁性材料と、その一応用事例である電磁波吸収体に関し、詳しくは、高周波電子回路／装置に於いて問題となる電磁干渉の抑制に有効な複素透磁率特性の優れた複合磁性体と、及びその製造方法ならびに電磁干渉抑制体に関する。

【0002】

【従来の技術】 近年、デジタル電子機器をはじめ高周波を利用する電子機器類の普及が進み、中でも準マイクロ波帯域を使用する移動通信機器類の普及がめざましい。それに伴ない、インダクタンス部品や電波吸収体に用いられる軟磁性体材料にも高周波への対応が求められている。

【0003】 加えて、その用途が携帯電話機等の小型、軽量な通信機器の場合には軟磁性体への要求特性に、軽量、肉薄、堅牢等が追加される。

【0004】軟磁性材料の高周波を阻む主な要因の一つは、渦電流損失であり、その低減手段として、表皮深さを考慮した薄膜化及び高電気抵抗化が挙げられ、前者の例としては、磁性体層と誘電体層を交互に積層製膜したものが挙げられ、また後者の代表としては、高電気抵抗のNi-Zn系フェライトを挙げることができる。

【0005】準マイクロ波帯域における軟磁性体の用途は、前述のインダクタンス部品及び電波吸収体が主であり、インダクタンス部品には実部透磁率 μ' が用いられ、電波吸収体には、虚数部透磁率 μ'' が用いられる。しかしながら、インダクタンス部品には高いQ値が要求される場合が多いものの、準マイクロ波帯域では必要なインダクタンスが極めて小さな値となる為に、磁心材料としての用途は限られている。

【0006】一方、虚数部透磁率 μ'' を用いる電波吸収体としての用途は、高周波機器類の普及と共に拡大しつつある。

【0007】例えば、携帯電話に代表される移動体通信機器には、とりわけ小型化・軽量化の要求が顕著であり、電子部品の高密度実装化が最大の技術課題となっている。従って、過密に実装された電子部品類やプリント配線あるいはモジュール間配線等が互いに極めて接近することになり、更には、信号処理速度の高速化も図られている為、静電結合及び/又は電磁結合による線間結合の増大化や放射ノイズによる干渉などが生じ、機器の正常な動作を妨げる自体が少なからず生じている。

【0008】このようなわゆる電磁障害に対して従来は、主に導体シールドを施す事による対策がなされてきた。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、導体シールドは、空間とのインピーダンス不整合に起因する電磁波の反射を利用する電磁障害対策である為に、遮蔽効果は、得られても不要輻射源からの反射による電磁結合が助長され、その結果二次的な電磁障害対策として、磁性体の磁気損失、即ち虚数部透磁率 μ'' を利用した不要輻射の抑制が有効である。

【0010】即ち、前記シールド体と不要輻射源の間に磁気損失の大きい磁性体を配設する事で不要輻射を抑制することが出来る。

【0011】ここで、磁性体の厚さdは、 $\mu'' > \mu'$ なる関係を満足する周波数帯域にて μ'' に反比例するので、前述した電子機器の小型化・軽量化要求に迎合する薄い電磁干渉抑制体即ち、シールド体と吸収体からなる複合体を得るために、虚数部透磁率 μ'' の大きな磁性体が必要となる。また、前述した不要輻射は、多くの場合その成分が広い周波数範囲にわたっており、電磁障害に係る周波数成分の特定も困難な場合が少なくない。従って、前記電磁干渉抑制体についてもより広い周波数の不要輻射に対応できるものが望まれている。

【0012】懸る要求に対応すべく透磁率の高周波特性に優れ、任意の広い周波数範囲にて磁気損失体として機能する磁性体、即ち、低周波数領域にて、 μ' の値が大きく、更に、 $\mu'' > \mu'$ なる周波数領域に於いて、 μ'' が任意の広い周波数範囲に亘って大きな値を示す様な磁性体の検討を行った。

【0013】その結果として、本発明者らは、以前に、形状異方性を有する軟磁性体粉末において磁気共鳴により発現すると思われる数十MHzから数GHzに亘る磁気損失を利用する電磁干渉抑制体（特開平7-212079号）を提供した。

【0014】また、更に本発明者らは、周波数の異なる複数の磁気共鳴を発現させることにより、各々の磁気共鳴に対応して異なる周波数領域に出現するここの磁気損失が十倍され、その結果として得られる広帯域な μ'' 分散特性を利用した電磁干渉抑制体（特願平7-183911号）を提供した。

【0015】これらの発明に於いて用いられる偏平状の軟磁性体金属粉末は、同じ組成の球状金属粉末に比べてより高い異方性磁界 H_k を有しており、これは偏平化による形状異方性の寄与、即ち反磁界係数 N_d によるものである。ここで反磁界係数 N_d は、粉末の形状とアスペクト比により与えられるが、アスペクト比が1.0を越えるとほぼ飽和し、より大きなアスペクト比を与えて以降その変化量は僅かである。従って、磁気共鳴周波数を可変できる範囲が比較的限定されるという問題があった。

【0016】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、上記の問題について様々な経験や前述した観点から熟慮の結果、球状粉末等形状異方性の小さい粉末を偏平化加工する際に生じる応力歪みに着目し、従来において、殆ど0に近い値が好ましいとされていた磁気定数 λ を $\lambda \neq 0$ とし、且つ、その符号を、即ち、歪みによる異方性発現の向きをも積極的に利用すると共に、更に焼鈍処理により残留歪みを可変させることにより、前記形状異方性と併せてより広範囲な磁気共鳴周波数を与えることを期待した。

【0017】一方、所望する透磁率の周波数特性を得るために、磁気共鳴が生じるよりも低い周波数において渦電流による透磁率の劣化が生じない様な対策も併せて講じることが必要である。

【0018】前述した様に、有効な渦電流対策の一つとして磁性体層と誘電体層を交互に積層する様に製膜した積層構造化が提案され、一部実用化されている。この積層構造磁性体である複合磁性体の特徴は、磁性体層の厚さが電気抵抗、透磁率及び周波数にて定まる表皮深さと同等もしくはそれ以下の厚さとなっている点である。しかしながら、この積層構造磁性体には誘電体層を介して変位電流が流れるために透磁率特性が劣化するという問題がある。ここで変位電流は、積層構造磁性体のサイズ（即ち、積層方向と直交する向きの大きさ）に依存する

ので、積層構造磁性体を細分化しカラム構造とすることで、その影響を排除することが可能となる。このような積層構造磁性体をスパッタリング等のいわゆる薄膜製膜プロセスにて実現するのは容易ではないが、前記磁性体層に軟磁性体粉末を当てはめることで実用化が容易となる。

【0019】即ち、①磁性体層に相当する軟磁性体粉末は、その厚みが前記表皮深さよりも薄いものとする、②軟磁性体粉末は、反磁界係数 N_d をほぼ1にするために十分なアスペクト比を有するものとする、③誘電体層に相当するものとして、磁性体層表面を酸化させたものを設けることにより渦電流損失の極めて小さい複合磁性体を得ることができると期待した。

【0020】このような複合磁性体の実現は、優れた高周波透磁率特性を与えるのみならず、電気的な非良導性を与えるので電波吸収体としての対空間インピーダンス整合にも極めて有効であろうことも予想される。

【0021】即ち、磁歪定数 λ ($\lambda \neq 0$) を広範囲な磁気共鳴周波数の実現に積極的に利用すると共に、軟磁性体粉末の厚さを特定し、その軟磁性体粉末の表面に誘電体層を設けることにより、渦電流損失が少なく、且つ空間とのインピーダンス不整合の生じにくい複合磁性体を開発するに至った。

【0022】即ち、本発明によれば、磁歪定数 λ が正の組成を有し偏平状に加工された軟磁性体粉末と、有機結合剤からなることを特徴とする複合磁性体が得られる。

【0023】また、本発明によれば、磁歪定数 λ が負の組成を有し偏平状に加工された軟磁性体粉末と、有機結合剤からなることを特徴とする複合磁性体が得られる。

【0024】また、本発明によれば、前記複合磁性体において、前記軟磁性体粉末は、前記偏平状に加工された後、加工により生じる残留歪み緩和化の為の焼鈍処理が施されたものであることを特徴とする複合磁性体が得られる。

【0025】また、本発明によれば、前記いずれかの複合磁性体において、前記偏平状に加工された軟磁性体粉末の平均の厚さは、該複合磁性体の使用周波数における表皮深さ δ よりも小さいことを特徴とする複合磁性体が得られる。

【0026】また、本発明によれば、前記いずれかの複合磁性体において、前記偏平状に加工された軟磁性体粉末は、該複合磁性体中において、配向配列されていることを特徴とする複合磁性体が得られる。

【0027】また、本発明によれば、前記いずれかの複合磁性体において、前記軟磁性体粉末は、少なくともその表面に酸化物層を有することを特徴とする複合磁性体が得られる。

【0028】また、本発明によれば、前記複合磁性体において、前記少なくともその表面に酸化物層を有する軟磁性体粉末は、該酸化物層を気相中除酸法又は液相中除

酸法により酸素含有混合ガスにて表面酸化をすることにより形成されたものであることを特徴とする複合磁性体が得られる。

【0029】また、本発明によれば、前記いずれかの複合磁性体において、前記軟磁性体粉末と、前記有機結合剤からなり、且つ、電気的に非良導性であることを特徴とする複合磁性体が得られる。

【0030】また、本発明によれば、異なる大きさ及び／又は異なる符号の磁歪定数 λ を有する少なくとも二つの偏平状軟磁性体粉末と有機結合剤からなる複合磁性体が得られる。

【0031】また、本発明によれば、焼鈍処理条件の異なる少なくとも2つの偏平状軟磁性体粉末と有機結合剤からなる複合磁性体が得られる。

【0032】また、本発明によれば、軟磁性体と有機結合剤からなる複合磁性体の製造方法に関し、前記軟磁性体粉末を偏平状に加工し、該加工により前記軟磁性体粉末に生じる残留歪み緩和化の為の焼鈍処理を施し、該焼鈍処理を施された前記軟磁性体粉末の少なくとも表面に気相中除酸法又は液相中除酸法により酸素含有ガスにて表面酸化をすることで酸化物層を形成することを特徴とする複合磁性体の製造方法が得られる。

【0033】また、本発明によれば、軟磁性体と有機結合剤からなる複合磁性体の製造方法に関し、前記軟磁性体粉末を偏平状に加工し、前記軟磁性体粉末の少なくとも表面に気相中除酸法又は液相中除酸法により酸素含有ガスにて表面酸化をすることで酸化物層を形成し、該酸化物層を形成された前記軟磁性体粉末に前記偏平状に加工したことにより生じる残留歪み緩和化の為の焼鈍処理を施すことを特徴とする複合磁性体の製造方法が得られる。

【0034】また、本発明によれば、軟磁性体と有機結合剤からなる複合磁性体の製造方法に関し、前記軟磁性体粉末を偏平状に加工し、該加工された前記軟磁性体粉末に、前記加工により前記軟磁性体に生じる残留歪み緩和化の為の焼鍙処理と、前記軟磁性体粉末の少なくとも表面に気相中除酸法により酸素含有ガスにて表面酸化をすることで酸化物層を形成する処理とを同時に行うことを特徴とする複合磁性体の製造方法が得られる。

【0035】また、本発明によれば、前記いずれかの複合磁性体の製造方法に関し、前記軟磁性体粉末を偏平状に加工する際に、前記軟磁性体に加わる歪み量、あるいは前記焼鈍処理の条件を変えることにより該複合磁性体の複素透磁率の周波数領域を制御することを特徴とする複合磁性体の製造方法が得られる。

【0036】更に、本発明によれば、前記いずれかの複合磁性体をその構成要素として有する電磁干渉抑制体であって、前記複合磁性体の互いに異なる大きさの残留歪みに相応して相異なる周波数領域に出現する複数の磁気共鳴の内、最も低い周波数領域に現れる磁気共鳴が、所

望する電磁干渉抑制周波数帯域の下限よりも低い周波数領域にあることを特徴とする電磁干渉抑制体が得られる。

【0037】

【発明の実施の形態】本発明に於いては、高周波透磁率の大きな鉄アルミ珪素合金（センダスト）、鉄ニッケル合金（パーマロイ）、或いはアモルファス合金等の金属軟磁性材料を原料素材として用いることが出来る。

【0038】本発明では、これらの粗原料を粉碎、延伸・引裂加工等により偏平化し、その厚みを表皮深さと同等以下にすると共に、反磁界係数 N_d をほぼ1にするために偏平化された軟磁性体材料のアスペクト比を概ね10以上とする必要がある。ここで表皮深さ δ は次式により与えられる。

$$【0039】\delta = (\rho / \pi \mu f)^{1/2}$$

前式において、 ρ は比抵抗、 μ は透磁率、 f は周波数を表す。ここで、目的の周波数によってその値が異なってくるが、所望の表皮深さとアスペクト比を得るには、出発粗原料粉末の平均粒径を特定するのが最も簡単な手段の一つである。この粉碎、延伸・引裂加工に用いることの出来る代表的な粉碎手段として、ボールミル、アトライタ、ピンミル等を挙げることが出来、前述した条件を満足する軟磁性体粉末の厚さとアスペクト比が得られれば粉碎手段に制限はないが、本発明の効果に密接にかかわる延伸・引裂加工により生じる残留歪みの大きさを考慮して加工手段及び加工条件を設定する必要がある。

【0040】本発明に於いて、磁歪定数 λ が正の原料磁性体を用いた場合には、延伸・引裂加工により形状磁気異方性が生じると共に、残留歪みによる歪磁気異方性（磁気弾性効果）が生じ、両者の向きが同じとなる為、異方性磁界は両者の和となる。従って、磁歪定数 λ がゼロである原料を用いた場合に比べて、異方性磁界はより大きな値となり、磁気共鳴周波数よりも高いものとなる。

【0041】ところでこの偏平化加工により生じる残留歪みは、適当な焼鈍処理を施すことにより緩和されるので、偏平化処理後に焼鈍処理を行った原料粉末を用いた複合磁性体では、焼鈍処理条件に応じた周波数 f_r に磁気共鳴が現れる。この磁気共鳴周波数 f_r は、焼鈍処理をしていない磁性粉を用いた複合磁性体よりも低く、磁歪定数 λ がゼロの磁性粉を用いた複合磁性体よりも高くなり、焼鈍処理条件を製御することで、磁気共鳴周波数をその範囲に任意に設定することが可能である。一方、磁歪定数 λ が負の原料磁性体を用いた場合には、残留歪みにより生じる歪み磁気異方性（磁気弾性効果）の向きが形状磁気異方性の向きと直交することになり、異方性磁界が小さくなり磁気共鳴周波数がゼロ磁歪原料の場合に比べて低くなる。

【0042】このように、形状異方性と磁歪定数 λ の符号、及び焼鈍処理条件を組み合わせることにより、磁気

共鳴周波数 f_r を大幅に可変する事が可能となる。

【0043】また、本発明に於いては、個々の磁性粉末同士の電気的に隔離、即ち複合磁性体の非良導性を磁性粉の高充填状態においても確保出来る様、軟磁性体粉末は、その表面に誘電体層が形成されている必要がある。この誘電体層は、金属磁性粉末の表面を酸化することにより得られる構成元素と酸素とからなる金属酸化物層であり、例えば、鉄アルミ珪素合金（センダスト）の場合には、主に $Al_{10}O_x$ 及び Si_2O_x であると推察される。金属粉末の表面を酸化させる手段の一例として、特に粉末の大きさが比較的小さく、活性度の高いものについては、炭化水素系有機溶媒中あるいは不活性ガス雰囲気中にて酸素分圧の制御された窒素-酸素混合ガスを導入する液相中除酸法あるいは気相中除酸法により酸か処理する事が制御の容易性、安定性、及び安全性の点で好ましい。

【0044】尚、この表面酸化の為の除酸処理と、先に説明した残留歪み低減の為の焼鈍処理とは、どちらを先に行つてもよく、また、同一工程にて行う事も可能である。

【0045】本発明の一構成要素として用いる有機結合剤としては、ポリエステル系樹脂、ポリエチレン系樹脂、ポリ塩化ビニル系樹脂、ポリビニルブチラール樹脂、ポリウレタン樹脂、セルロース系樹脂、ABS樹脂、ニトリルゴム、スチレン-ブタジエン系ゴム、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、アミド系樹脂、イミド系樹脂、或いはそれらの共重合体を挙げることが出来る。

【0046】以上に述べた、本発明の構成要素を混練・分散し複合磁性体を得る手段には特に制限はなく、用いる結合剤の性質や工程の用意差を基準に好ましい方法を選択すればよい。

【0047】この混練・分散された磁性体混合物中の磁性粒子を配向・配列させる手段としては、剪断応力による方法と磁場配向による方法があり、いずれの方法を用いても良い。

【0048】

【実施例】次に本発明の効果を検証する為に実験をしたので、以下に実施例として詳細に説明する。

【0049】はじめに、水アトマイズ法により作製された磁歪定数 λ の異なる複数の鉄ニッケル合金粉末及び鉄アルミ珪素合金粉末を用意し、アトライタ及びピンミルを用い様々な条件下にて粉碎、延伸・引裂加工を行い、更に、炭化水素系有機溶媒中で酸素分圧35%の窒素-酸素混合ガスを導入しながら8次間攪拌し液相中除酸処理した後、分級処理を施し異方性磁界（ H_k ）の異なる複数の粉末試料を得た。ここで得られた粉末を表面分析した結果、金属酸化物の生成が明確に確認され、試料粉末の表面に於ける酸か被膜の存在が認められた。

【0050】尚、粉碎、延伸・引裂加工処理された鉄一

ニッケル合金粉末、及び鉄アルミ珪素合金粉末を減圧乾燥し、これを酸素分圧20%の窒素-酸素混合ガス雰囲気中で気相除酸した試料についてもその表面に金属酸化物が検出され、本発明の複合磁性体に用いることの出来る少なくともその表面が酸化された軟磁性体粉末が液相中除酸法あるいは気相中除酸法にて作成できることが確認された。

【0051】本発明の効果を検証するにあたり、これらの粉末試料を用いて以下に述べる複合磁性体を作製し、 $\mu-f$ 特性及び電磁干渉抑制効果を調べた。

【0052】 $\mu-f$ 特性の測定には、トロイダル形状に加工された複合磁性体試料を用いた。これを1ターンコイルを形成するテストフィックスチャに挿入し、インピーダンスを計測することにより、 μ' 及び μ'' を求めた。

【0053】一方、電磁干渉抑制効果の検証は、図1に

示される評価系により行い、電磁干渉抑制体10の試料には銅板8が裏打ちされた厚さ2mmで一辺の長さが20cmの複合磁性体2を用いた。ここで、電磁界波源用発信器6を用いた波源用素子及び受信用素子にはループ径1.5mmの微小ループアンテナ4, 5を用い、結合レベルの測定にはネットワークアナライザ（電磁界強度測定器）7を使用した。

【0054】【検証用試料1】以下の配合からなる軟磁性体ペーストを調合し、これをドクターブレード法により製膜し、熱プレスを施した後に85℃にて24次間キュアリングを行い検証用試料1を得た。

【0055】尚、得られた試料1を走査型電子顕微鏡を用いて解析したところ、粒子配列方向は試料膜面内方向であった。

偏平状軟磁性体（Fe-Al-Si合金）微粉末A・・・95重畳部

平均粒径 : $\phi 20 \mu m \times 0.3 \mu m^t$

磁歪の大きさ : +0.72

焼鈍処理 : なし

ポリウレタン樹脂 8重畳部

硬化剤（イソシアネート化合物） 2重畳部

溶剤（シクロヘキサンとトルエンの混合物） 40重畳部

ここで磁歪の大きさは、H=200エルステッドでの歪み量d1/1×10⁻⁶の値であり、これは後述する検証用試料2乃至検証用試料4、及び比較用試料5及び比較用試料6についても同じである。

【0056】【検証用試料2】以下の配合からなる軟磁性体ペーストを調合し、これをドクターブレード法によ

り製膜し、熱プレスを施した後に85℃にて24次間キュアリングを行い検証用試料2を得た。

【0057】尚、得られた試料2を走査型電子顕微鏡を用いて解析したところ、粒子配列方向は試料膜面内方向であった。

偏平状軟磁性体（Fe-Al-Si合金）微粉末B・・・95重畳部

平均粒径 : $\phi 20 \mu m \times 0.3 \mu m^t$

磁歪の大きさ : +0.72

焼鈍処理 : 650℃×2hr

ポリウレタン樹脂 8重畳部

硬化剤（イソシアネート化合物） 2重畳部

溶剤（シクロヘキサンとトルエンの混合物） 40重畳部

【検証用試料3】以下の配合からなる軟磁性体ペーストを調合し、これをドクターブレード法により製膜し、熱プレスを施した後に85℃にて24次間キュアリングを行い検証用試料3を得た。

【0058】尚、得られた試料3を走査型電子顕微鏡を用いて解析したところ、粒子配列方向は試料膜面内方向であった。

偏平状軟磁性体（Fe-Ni合金）微粉末C 95重畳部

平均粒径 : $\phi 30 \mu m \times 0.4 \mu m^t$

磁歪の大きさ : -1.03

焼鈍処理 : なし

ポリウレタン樹脂 8重畳部

硬化剤（イソシアネート化合物） 2重畳部

溶剤（シクロヘキサンとトルエンの混合物） 40重畳部

【検証用試料4】以下の配合からなる軟磁性体ペーストを調合し、これをドクターブレード法により製膜し、熱プレスを施した後に85℃にて24次間キュアリングを行い検証用試料4を得た。

【0059】尚、得られた試料4を走査型電子顕微鏡を用いて解析したところ、粒子配列方向は試料膜面内方向であった。

偏平状軟磁性体 (Fe-A1-Si合金) 微粉末A ··· 60重疊部

平均粒径 : $\phi 20 \mu m \times 0.3 \mu m^t$

磁歪の大きさ : +0.72

焼鈍処理 : なし

偏平状軟磁性体 (Fe-A1-Si合金) 微粉末B ··· 35重疊部

平均粒径 : $\phi 20 \mu m \times 0.3 \mu m^t$

磁歪の大きさ : +0.72

焼鈍処理 : $650^\circ C \times 2 h r$

ポリウレタン樹脂 ··· 8重疊部

硬化剤 (イソシアネート化合物) ··· 2重疊部

溶剤 (シクロヘキサンとトルエンの混合物) ··· 40重疊部

[比較用試料5] 以下の配合からなる軟磁性体ペースト 行い検証用試料5を得た。

を調合し、これをドクターブレード法により製膜し、熱プレスを施した後に $85^\circ C$ にて 24次間キュアリングを行った。

【0060】尚、得られた試料5を走査型電子顕微鏡を用いて解析したところ、ほぼ等方的な配列であった。

略球状軟磁性体 (Fe-A1-Si合金) 微粉末D ··· 95重疊部

平均粒径 : $\phi 15$

ポリウレタン樹脂 ··· 8重疊部

硬化剤 (イソシアネート化合物) ··· 2重疊部

溶剤 (シクロヘキサンとトルエンの混合物) ··· 40重疊部

[比較用試料6] 以下の配合からなる軟磁性体ペースト 20 を調合し、これをドクターブレード法により製膜し、熱プレスを施した後に $85^\circ C$ にて 24次間キュアリングを行った。

【0061】尚、得られた試料6を走査型電子顕微鏡を用いて解析したところ、粒子配列方向は試料膜面内方向であった。

行い検証用試料6を得た。

偏平状軟磁性体 (Fe-A1-Si合金) 微粉末E ··· 95重疊部

平均粒径 : $\phi 20 \mu m \times 0.4 \mu m^t$

磁歪の大きさ : ほぼ0

ポリウレタン樹脂 ··· 8重疊部

硬化剤 (イソシアネート化合物) ··· 2重疊部

溶剤 (シクロヘキサンとトルエンの混合物) ··· 40重疊部

得られた各試料の実部透磁率 μ' 及び磁気共鳴周波数 f_r 30 を下記表1に示す。

【表1】

	粉末充填率	* 実部透磁率 μ'	共鳴周波数 f_r
検証用試料1	30%	14	50MHz
検証用試料2	29%	16	30MHz
検証用試料3	33%	19	20MHz
比較用試料5	53%	10	**10MHz
比較用試料6	31%	17	25MHz

注) * $f = 10$ (MHz) での値。

** 明確な共鳴はみられず。

【0063】また、図2は、本発明の検証例である試料1乃至試料2及び比較例である試料6の μ - f 特性であり、磁気共鳴周波数 f_r は、正の磁歪定数 λ を有する磁性粉末を用いた試料1が最も高く、実部透磁率 μ' の値は磁歪定数 λ がほぼゼロである試料6が最も大きな値を示している。試料2は、試料1で用いた磁性粉末に焼鈍処理を施したものと原料粉末に用いたものであるが、図2から明らかな様に磁気共鳴周波数 f_r の値、及び実部

透磁率 μ' の値ともに試料1と試料6の中間に位置している。

【0064】一方、前記表1から判るように、負の磁歪定数 λ を有する試料3では、磁気共鳴周波数 f_r が磁歪定数 λ がほぼゼロである試料6よりも更に低い周波数となっていると共に、実部透磁率 μ' の値も試料6より大きな値を示している。尚、いずれの場合でも略球状の原料磁性粉末を用いた比較用試料である試料5に比べて実

部透磁率 μ' の差は歴然である。

【0065】これらの結果から、磁歪定数 λ をゼロでない値とし、更に焼鈍により残留歪み量をも変化させた事により、透磁率の周波数特性を広い範囲にて制御する事が出来、加えて磁性粉末の厚さを特定し、その表面に誘電体層を設けたことで、高周波域において高い透磁率が得られる事が明白である。

【0066】次に、検証用試料4及び比較用試料5について、それぞれの粉末充填率、表面抵抗、 μ'' 分布、及び電磁干渉抑制効果を示したもの下記表2に示す。

【0067】

【表2】

	検証用試料4	比較用試料5
粉末充填率	31%	53%
表面抵抗	$9 \times 10^7 \Omega$	$4 \times 10^7 \Omega$
μ'' 分布	広い	狭い
信号減衰量	800MHz 1.5GHz	6.5dB 7.7dB
	3.8dB	4.3dB

【0068】ここで、表面抵抗はASTM-D-257法による測定値であり、 μ'' 分布はそれをお互いと比較したものであり、電磁干渉抑制効果の値は、銅板を基準(0dB)としたときの信号減衰量である。

【0069】前記表2により以下に述べる効果が明白である。

【0070】即ち、本発明の検証用試料及び比較用試料共、表面抵抗の値が $10^7 \sim 10^8 \Omega$ となっており、少なくとも表面が酸化された磁性粉末を用いる事によって、複合磁性体を非良導性とする事が出来、導体やパルクの金属磁性体等にみられるようなインピーダンス不整合による電磁波の表面反射を抑制出来る。

【0071】更に、本発明の検証用試料では、粉末の充填率が比較用試料に比べて低いにもかかわらず良好な電磁干渉抑制効果を示しており、本発明による μ'' 分布の

拡張効果が電磁干渉抑制に有効である事が理解出来る。

【0072】

【発明の効果】以上述べたように、本発明によれば、軟磁性体粉末と有機結合剤からなる複合磁性体に於いて、渦電流による透磁率特性の劣化を抑止出来る構成により高い実部透磁率を実現しつつ、磁歪定数 λ がゼロでない値の軟磁性体粉末を用い、更に焼鈍処理を組み合わせる事で、残留歪み量を変化させ高周波透磁率特性を広い範囲で制御する事が出来る。

【0073】また、本発明の一実施形態である異なる残留歪み量を有する複数の軟磁性体粉末からなる複合磁性体を用いた電磁干渉抑制体に於いては、異なる複数の磁気共鳴の出現により高帯域な μ'' 分散特性が得られるので、優れた電磁干渉抑制効果が現れている。即ち、本発明によれば、移動体通信機器をはじめとする高周波電位機器類内部での電磁波の干渉抑制に有効な薄厚の電磁干渉抑制体を得ることが出来る。

【0074】尚、本発明の複合磁性体及び電磁干渉抑制体は、その構成要素から判るように容易に可撓性を付与することが可能であり、複雑な形状への対応や、厳しい耐振動、衝撃要求への対応が可能である。

【図面の簡単な説明】

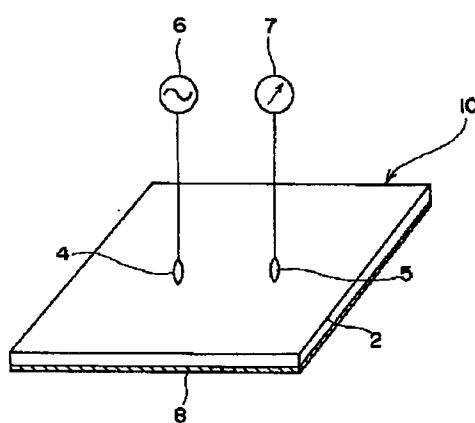
【図1】本発明の実施例において、電磁干渉抑制体の特性評価に用いた評価系を示す概略図である。

【図2】本発明の実施例において、検証用試料1乃至検証用試料2及び比較用試料6の条件にて作製した各試料の $\mu - f$ 特性を示す図である。

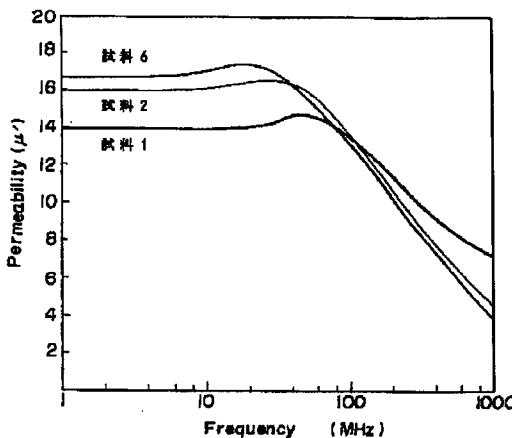
【符号の説明】

- | | |
|---------|-----------|
| 2 | 複合磁性体 |
| 30 4, 5 | 微小ループアンテナ |
| 6 | 電磁界波源用発信器 |
| 7 | 電磁界強度測定器 |
| 8 | 銅板 |
| 10 | 電磁干渉抑制体 |

【図1】



【図2】



【手続補正書】

【提出日】平成8年9月3日

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正内容】

【書類名】明細書

【発明の名称】複合磁性体及びその製造方法ならびに
電磁干渉抑制体

【特許請求の範囲】

【請求項1】 磁歪定数 λ が正の組成を有し扁平状に加工された軟磁性体粉末と、有機結合剤からなることを特徴とする複合磁性体。【請求項2】 磁歪定数 λ が負の組成を有し扁平状に加工された軟磁性体粉末と、有機結合剤からなることを特徴とする複合磁性体。

【請求項3】 請求項1及び請求項2に記載のいずれかの複合磁性体において、前記軟磁性体粉末は、前記扁平状に加工された後、加工により生じる残留歪み緩和化の為の焼鈍処理が施されたものであることを特徴とする複合磁性体。

【請求項4】 請求項1乃至請求項3に記載のいずれかの複合磁性体において、前記扁平状に加工された軟磁性体粉末の平均厚さは、該複合磁性体の使用周波数における表皮深さ δ よりも小さいことを特徴とする複合磁性体。

【請求項5】 請求項1乃至請求項4に記載のいずれかの複合磁性体において、

前記扁平状に加工された軟磁性体粉末は、該複合磁性体中ににおいて、配向配列されていることを特徴とする複合磁性体。

【請求項6】 請求項1乃至請求項5に記載のいずれかの複合磁性体において、前記軟磁性体粉末は、少なくともその表面に酸化物層を有することを特徴とする複合磁性体。

【請求項7】 請求項6に記載の複合磁性体において、前記少なくともその表面に酸化物層を有する軟磁性体粉末は、気相中徐酸法又は液相中徐酸法により酸素含有混合ガスにてその表面を酸化処理することにより形成されたものであることを特徴とする磁性複合体。

【請求項8】 請求項6及び請求項7に記載のいずれかの複合磁性体において、前記軟磁性体粉末と、前記有機結合剤とからなり、且つ、電気的に非良導性であることを特徴とする複合磁性体。

【請求項9】 異なる大きさの及び／又は異なる符号の磁歪定数 λ を有する少なくとも二つの扁平状軟磁性体粉末と有機結合剤からなる複合磁性体。

【請求項10】 焼鈍処理条件の異なる少なくとも2つの扁平状軟磁性体粉末と有機結合剤からなる複合磁性体。

【請求項11】 軟磁性体粉末と有機結合剤からなる複

合磁性体の製造方法に関し、
前記軟磁性体粉末を扁平状に加工し、
該加工により前記軟磁性体粉末に生じる残留歪み緩和化の為の焼鈍処理を施し、
該焼鈍処理が施された前記軟磁性体粉末の少なくとも表面に、気相中徐酸法又は液相中徐酸法により酸素含有ガスにて酸化物層を形成することを特徴とする複合磁性体の製造方法。

【請求項12】 軟磁性体粉末と有機結合剤からなる複合磁性体の製造方法に関し、
前記軟磁性体粉末を扁平状に加工し、
前記軟磁性体粉末の少なくとも表面に、気相中徐酸法又は液相中徐酸法により酸素含有ガスにて酸化物層を形成し、
該酸化物層が形成された前記軟磁性体粉末に、前記扁平状に加工したことにより生じる残留歪み緩和化の為の焼鈍処理を施すことを特徴とする複合磁性体の製造方法。

【請求項13】 軟磁性体粉末と有機結合剤からなる複合磁性体の製造方法に関し、
前記軟磁性体粉末を扁平状に加工し、
該加工された前記軟磁性体粉末に、前記加工により前記軟磁性体粉末に生じる残留歪み緩和化の為の焼鈍処理と、前記軟磁性体粉末の少なくとも表面に、気相中徐酸法により酸素含有ガスにて酸化物層を形成する処理とを同時に行うことを特徴とする複合磁性体の製造方法。

【請求項14】 請求項1乃至請求項13に記載のいずれかの複合磁性体の製造方法に関し、
前記軟磁性体粉末を扁平状に加工する際に、前記軟磁性体粉末に加わる歪み量、あるいは前記焼鈍処理の条件を変えることにより該複合磁性体の複素透磁率の周波数特性を制御することを特徴とする複合磁性体の製造方法。

【請求項15】 請求項1乃至請求項10に記載のいずれかの複合磁性体をその構成要素として有する電磁干渉抑制体であって、前記複合磁性体の互いに異なる大きさの残留歪みに相応して相異なる周波数領域に出現する複数の磁気共鳴の内、最も低い周波数領域に現れる磁気共鳴が、所望する電磁干渉抑制周波数帯域の下限よりも低い周波数領域にあることを特徴とする電磁干渉抑制体。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、高周波領域に於いて優れた複素透磁率特性を有する複合磁性材料と、その一応用事例である電磁波吸収体に関し、詳しくは、高周波電子回路／装置に於いて問題となる電磁干渉の抑制に有効な複素透磁率特性の優れた複合磁性体と、及びその製造方法ならびに電磁干渉抑制体に関する。

【0002】

【従来の技術】近年、デジタル電子機器をはじめ高周波を利用する電子機器類の普及が進み、中でも準マイクロ波帯域を使用する移動通信機器類の普及がめざましい。

それに伴ない、インダクタンス部品や電波吸収体に用いられる軟磁性体材料にも高周波化への対応が求められている。

【0003】加えて、その用途が携帯電話機等の小型、軽量な通信機器の場合には、軟磁性体への要求特性に、軽量、肉薄、堅牢等が追加される。

【0004】軟磁性材料の高周波化を阻む主な要因の一つは、渦電流損失であり、その低減手段として、表皮深さを考慮した薄膜化及び高電気抵抗化が挙げられ、前者の例としては、磁性体層と誘電体層を交互に積層製膜したもののが挙げられ、また後者の代表としては、高電気抵抗のNi-Zn系フェライトを挙げることができる。

【0005】準マイクロ波帯域における軟磁性体の用途は、前述のインダクタンス部品及び電波吸収体が主であり、インダクタンス部品には実部透磁率 μ' が用いられ、電波吸収体には、虚数部透磁率 μ'' が用いられる。しかしながら、インダクタンス部品には高いQ値が要求される場合が多いものの、準マイクロ波帯域では必要なインダクタンスが極めて小さな値となる為に、磁心材料としての用途は限られている。

【0006】一方、虚数部透磁率 μ'' を用いる電波吸収体としての用途は、高周波機器類の普及と共に拡大しつつある。

【0007】例えば、携帯電話に代表される移動体通信機器には、とりわけ小型化・軽量化の要求が顕著であり、電子部品の高密度実装化が最大の技術課題となっている。従って、過密に実装された電子部品類やプリント配線あるいはモジュール間配線等が互いに極めて接近することになり、更には、信号処理速度の高速化も図られている為、静電結合及び／又は電磁結合による線間結合の増大化や放射ノイズによる干渉などが生じ、機器の正常な動作を妨げる事態が少なからず生じている。

【0008】このようないわゆる電磁障害に対して従来は、主に導体シールドを施す事による対策がなされてきた。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、導体シールドは、空間とのインピーダンス不整合に起因する電磁波の反射を利用する電磁障害対策である為に、遮蔽効果は得られても不要輻射源からの反射による電磁結合が助長され、その結果二次的な電磁障害を引き起こす場合が少なからず生じている。その対策として、磁性体の磁気損失、即ち虚数部透磁率 μ'' を利用した不要輻射の抑制が有効である。

【0010】即ち、前記シールド体と不要輻射源の間に磁気損失の大きい磁性体を配設する事で不要輻射を抑制することが出来る。

【0011】ここで、磁性体の厚さdは、 $\mu'' > \mu'$ なる関係を満足する周波数帯域にて μ'' に反比例するので、前述した電子機器の小型化・軽量化要求に迎合する

薄い電磁干渉抑制体即ち、シールド体と吸収体からなる複合体を得るために、虚数部透磁率 μ'' の大きな磁性体が必要となる。また、前述した不要輻射は、多くの場合その成分が広い周波数範囲にわたっており、電磁障害に係る周波数成分の特定も困難な場合が少なくない。従って、前記電磁干渉抑制体についてもより広い周波数の不要輻射に対応できるものが望まれている。

【0012】懸る要求に対応すべく透磁率の高周波特性に優れ、任意の広い周波数範囲にて磁気損失体として機能する磁性体、即ち、低周波数領域にて、 μ' の値が大きく、更に、 $\mu'' > \mu'$ なる周波数領域に於いて、 μ'' が任意の広い周波数範囲に亘って大きな値を示す様な磁性体の検討を行った。

【0013】その結果として、本発明者らは、以前に、形状異方性を有する軟磁性体粉末において磁気共鳴により発現すると思われる数十MHzから数GHzに亘る磁気損失を利用する電磁干渉抑制体（特開平7-212079号）を提供した。

【0014】また、更に本発明者らは、周波数の異なる複数の磁気共鳴を発現させることにより、各々の磁気共鳴に対応して異なる周波数領域に出現する個々の磁気損失が重畠され、その結果として得られる広帯域な μ'' 分散特性を利用した電磁干渉抑制体（特願平7-183911号）を提供した。

【0015】これらの発明に於いて用いられる扁平状の軟磁性体金属粉末は、同じ組成の球状金属粉末に比べてより高い異方性磁界 H_k を有しており、これは扁平化による形状異方性の寄与、即ち反磁界係数 N_d によるものである。ここで反磁界係数 N_d は、粉末の形状とアスペクト比により与えられるが、アスペクト比が1.0を越えるとほぼ飽和し、より大きなアスペクト比を与えて、以降その変化量は僅かである。従って、磁気共鳴周波数を可変できる範囲が比較的限定されるという問題があった。

【0016】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、上記の問題について様々な経験や前述した観点から熟慮の結果、球状粉末等形状異方性の小さい粉末を扁平化加工する際に生じる応力歪みに着目し、従来において、殆ど0に近い値が好ましいとされていた磁歪定数 λ を $\lambda \neq 0$ とし、且つ、その符号を、即ち、歪みによる異方性発現の向きをも積極的に利用すると共に、更に焼鈍処理により残留歪みを制御することにより、前記形状異方性と併せてより広範囲な磁気共鳴周波数を与えることを期待した。

【0017】一方、所望する透磁率の周波数特性を得るために、磁気共鳴が生じるよりも低い周波数において渦電流による透磁率の劣化が生じない様な対策も併せて講じることが必要である。

【0018】前述した様に、有効な渦電流対策の一つとして磁性体層と誘電体層を交互に積層する様に製膜した

積層構造化が提案され、一部実用化されている。この積層構造を有する複合磁性体の特徴は、磁性体層の厚さが電気抵抗、透磁率及び周波数にて定まる表皮深さと同等もしくはそれ以下の厚さとなっている点である。しかしながら、この積層構造磁性体には誘電体層を介して変位電流が流れるために透磁率特性が劣化するという問題がある。ここで変位電流は、積層構造磁性体のサイズ（即ち、積層方向と直交する向きの大きさ）に依存するので、積層構造磁性体を細分化しカラム構造とすることで、その影響を排除することが可能となる。このような積層構造磁性体をスパッタリング等のいわゆる薄膜製膜プロセスにて実現するのは容易ではないが、前記磁性体層に軟磁性体粉末を当てはめることで実用化が容易となる。

【0019】即ち、①磁性体層に相当する軟磁性体粉末は、その厚みが前記表皮深さよりも薄いものとする、②軟磁性体粉末は、反磁界係数 N_d をほぼ1にするために十分なアスペクト比を有するものとする、③誘電体層に相当するものとして、軟磁性体粉末表面を酸化させることにより得られる誘電体層を設けることで、渦電流損失の極めて小さい複合磁性体を得ることができると期待した。

【0020】このような複合磁性体の実現は、優れた高周波透磁率特性を与えるのみならず、電気的な非良導性を与え得るので電波吸収体としての対空間インピーダンス整合にも極めて有効であろうことも予想される。

【0021】即ち、磁歪定数 λ （ $\lambda \neq 0$ ）を広範囲な磁気共鳴周波数の実現に積極的に利用すると共に、軟磁性体粉末の厚さを特定し、その軟磁性体粉末の表面に誘電体層を設けることにより、渦電流損失が少なく、且つ空間とのインピーダンス不整合の生じにくい複合磁性体を発明するに至った。

【0022】即ち、本発明によれば、磁歪定数 λ が正の組成を有し扁平状に加工された軟磁性体粉末と、有機結合剤からなることを特徴とする複合磁性体が得られる。

【0023】また、本発明によれば、磁歪定数 λ が負の組成を有し扁平状に加工された軟磁性体粉末と、有機結合剤からなることを特徴とする複合磁性体が得られる。

【0024】また、本発明によれば、前記複合磁性体において、前記軟磁性体粉末は、前記扁平状に加工された後、加工により生じる残留歪み緩和化の為の焼鈍処理が施されたものであることを特徴とする複合磁性体が得られる。

【0025】また、本発明によれば、前記いずれかの複合磁性体において、前記扁平状に加工された軟磁性体粉末の平均厚さは、該複合磁性体の使用周波数における表皮深さδよりも小さいことを特徴とする複合磁性体が得られる。

【0026】また、本発明によれば、前記いずれかの複合磁性体において、前記扁平状に加工された軟磁性体粉

末は、該複合磁性体中において、配向配列されていることを特徴とする複合磁性体が得られる。

【0027】また、本発明によれば、前記いずれかの複合磁性体において、前記軟磁性体粉末は、少なくともその表面に酸化物層を有することを特徴とする複合磁性体が得られる。

【0028】また、本発明によれば、前記複合磁性体において、前記少なくともその表面に酸化物層を有する軟磁性体粉末は、気相中徐酸法又は液相中徐酸法により酸素含有混合ガスにてその表面を酸化処理することにより形成されたものであることを特徴とする磁性複合体が得られる。

【0029】また、本発明によれば、前記いずれかの複合磁性体において、前記軟磁性体粉末と、前記有機結合剤とからなり、且つ、電気的に非良導性であることを特徴とする複合磁性体が得られる。

【0030】また、本発明によれば、異なる大きさの及び／又は異なる符号の磁歪定数 λ を有する少なくとも二つの扁平状軟磁性体粉末と有機結合剤からなる複合磁性体が得られる。

【0031】また、本発明によれば、焼鈍処理条件の異なる少なくとも2つの扁平状軟磁性体粉末と有機結合剤からなる複合磁性体が得られる。

【0032】また、本発明によれば、軟磁性体粉末と有機結合剤からなる複合磁性体の製造方法に関し、前記軟磁性体粉末を扁平状に加工し、該加工により前記軟磁性体粉末に生じる残留歪み緩和化の為の焼鈍処理を施し、

該焼鈍処理が施された前記軟磁性体粉末の少なくとも表面に、気相中徐酸法又は液相中徐酸法により酸素含有ガスにて酸化物層を形成することを特徴とする複合磁性体の製造方法が得られる。

【0033】また、本発明によれば、軟磁性体粉末と有機結合剤からなる複合磁性体の製造方法に関し、前記軟磁性体粉末を扁平状に加工し、前記軟磁性体粉末の少なくとも表面に、気相中徐酸法又は液相中徐酸法により酸素含有ガスにて酸化物層を形成し、該酸化物層が形成された前記軟磁性体粉末に、前記扁平状に加工したことにより生じる残留歪み緩和化の為の焼鈍処理を施すことを特徴とする複合磁性体の製造方法が得られる。

【0034】また、本発明によれば、軟磁性体粉末と有機結合剤からなる複合磁性体の製造方法に関し、前記軟磁性体粉末を扁平状に加工し、該加工された前記軟磁性体粉末に、前記加工により前記軟磁性体粉末に生じる残留歪み緩和化の為の焼鈍処理と、前記軟磁性体粉末の少なくとも表面に、気相中徐酸法により酸素含有ガスにて酸化物層を形成する処理とを同時に行うことを行なうことを特徴とする複合磁性体の製造方法が得られる。

【0035】また、本発明によれば、前記いずれかの複合磁性体の製造方法に関し、前記軟磁性体粉末を扁平状に加工する際に、前記軟磁性体粉末に加わる歪み量、あ

るいは前記焼鈍処理の条件を変えることにより該複合磁性体の複素透磁率の周波数特性を制御することを特徴とする複合磁性体の製造方法が得られる。

【0036】更に、本発明によれば、前記いずれかの複合磁性体をその構成要素として有する電磁干渉抑制体であって、前記複合磁性体の互いに異なる大きさの残留歪みに相応して相異なる周波数領域に出現する複数の磁気共鳴の内、最も低い周波数領域に現れる磁気共鳴が、所望する電磁干渉抑制周波数帯域の下限よりも低い周波数領域にあることを特徴とする電磁干渉抑制体が得られる。

【0037】

【発明の実施の形態】本発明に於いては、高周波透磁率の大きな鉄アルミ珪素合金（センダスト）、鉄ニッケル合金（パーマロイ）、或いはアモルファス合金等の金属軟磁性材料を原料素材として用いることが出来る。

【0038】本発明では、これらの粗原料を粉碎、延伸・引裂加工等により扁平化し、その厚みを表皮深さと同等以下にすると共に、反磁界係数 N_d をほぼ1にするために扁平化された軟磁性体粉末のアスペクト比を概ね1.0以上とする必要がある。ここで表皮深さ δ は次式により与えられる。

$$[0039] \delta = (\rho / \pi \mu f)^{1/2}$$

前式において、 ρ は比抵抗、 μ は透磁率、 f は周波数である。したがって表皮深さ δ は、目的の周波数によってその値が異なってくるが、所望の表皮深さとアスペクト比を得るには、出発粗原料粉末の平均粒径を特定するのが最も簡単な手段の一つである。この粉碎、延伸・引裂加工に用いることの出来る代表的な粉碎手段として、ボールミル、アトライタ、ピンミル等を挙げることが出来、前述した条件を満足する軟磁性体粉末の厚さとアスペクト比が得られれば粉碎手段に制限はないが、本発明の効果に密接にかかわる延伸・引裂加工により生じる残留歪みの大きさを考慮して加工手段及び加工条件を設定する必要がある。

【0040】本発明に於いて、磁歪定数 λ が正の原料磁性体を用いた場合には、延伸・引裂加工により形状磁気異方性が生じると共に、残留歪みによる歪磁気異方性（磁気弾性効果）が生じ、両者の向きが同じとなる為、異方性磁界は両者の和となる。従って、磁歪定数 λ がゼロである原料を用いた場合に比べて、異方性磁界はより大きな値となり、磁気共鳴周波数もより高いものとなる。

【0041】ところで、この扁平化加工により生じる残留歪みは、適当な焼鈍処理を施すことにより緩和されるので、扁平化処理後に焼鈍処理を行った原料粉末を用いた複合磁性体では、焼鈍処理条件に応じた周波数 f_r に磁気共鳴が現れる。この磁気共鳴周波数 f_r は、焼鈍処理をしていない磁性粉を用いた複合磁性体よりも低く、磁歪定数 λ がゼロの磁性粉を用いた複合磁性体よりも高

くなり、焼鈍処理条件を制御することで、磁気共鳴周波数をその範囲内に於いて任意に設定することが可能である。一方、磁歪定数 λ が負の原料磁性体を用いた場合には、残留歪みにより生じる歪み磁気異方性（磁気弾性効果）の向きが形状磁気異方性の向きと直交することになり、異方性磁界が小さくなり磁気共鳴周波数がゼロ磁歪原料の場合に比べて低くなる。

【0042】このように、形状異方性と磁歪定数 λ の符号、及び焼鈍処理条件を組み合わせることにより、磁気共鳴周波数 f_r を大幅に変化させる事が可能となる。

【0043】また、本発明に於いては、個々の磁性粉末同士の電気的に隔離、即ち複合磁性体の非良導性を磁性粉の高充填状態においても確保出来る様、軟磁性体粉末は、その表面に誘電体層が形成されている必要がある。この誘電体層は、金属磁性粉末の表面を酸化させることにより得られる構成元素と酸素とからなる金属酸化物層であり、例えば、鉄アルミ珪素合金（センダスト）の場合には、主に A_1O_x 及び S_iO_x であると推察される。金属粉末の表面を酸化させる手段の一例として、特に粉末の大きさが比較的小さく、活性度の高いものについては、炭化水素系有機溶媒中あるいは不活性ガス雰囲気中にて酸素分圧の制御された窒素一酸素混合ガスを導入する液相中徐酸法あるいは気相中徐酸法により酸化処理する事が制御の容易性、安定性、及び安全性の点で好ましい。

【0044】尚、この表面酸化の為の徐酸処理と、先に説明した残留歪み低減の為の焼鈍処理については、どちらを先に行ってもよく、また、同一工程にて行う事も可能である。

【0045】本発明の一構成要素として用いる有機結合剤としては、ポリエステル系樹脂、ポリエチレン系樹脂、ポリ塩化ビニル系樹脂、ポリビニルブチラール樹脂、ポリウレタン樹脂、セルロース系樹脂、ABS樹脂、ニトリルブタジエン系ゴム、スチレンーブタジエン系ゴム、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、アミド系樹脂、イミド系樹脂、或いはそれらの共重合体を挙げることが出来る。

【0046】以上に述べた、本発明の構成要素を混練・分散し複合磁性体を得る手段には特に制限はなく、用いる結合剤の性質や工程の容易さを基準に好ましい方法を選択すればよい。

【0047】この混練・分散された磁性体混合物中の磁性粒子を配向・配列させる手段としては、剪断応力による方法と磁場配向による方法があり、いずれの方法を用いても良い。

【0048】

【実施例】次に本発明の効果を検証する為に実験を行つたので、以下に実施例として詳細に説明する。

【0049】はじめに、水アトマイズ法により作製された磁歪定数 λ の異なる複数の鉄ニッケル合金粉末及び鉄アルミ珪素合金粉末を用意し、アトライト及びピンミルを用い様々な条件下にて粉碎、延伸・引裂加工を行い、更に、炭化水素系有機溶媒中で酸素分圧 3.5% の窒素一酸素混合ガスを導入しながら 8 時間攪拌し液相中徐酸処理した後、分級処理を施し異方性磁界 (H_k) の異なる複数の粉末試料を得た。ここで得られた粉末を表面分析した結果、金属酸化物の生成が明確に確認され、試料粉末の表面に於ける酸化被膜の存在が認められた。

【0050】尚、粉碎、延伸・引裂加工処理された鉄ニッケル合金粉末、及び鉄アルミ珪素合金粉末を減圧乾燥し、これを酸素分圧 2.0% の窒素一酸素混合ガス雰囲気中で気相徐酸した試料についてもその表面に金属酸化物が検出され、本発明の複合磁性体に用いることの出来る少なくともその表面が酸化された軟磁性体粉末が液相中徐酸法あるいは気相中徐酸法にて作成できることが確認された。

【0051】本発明の効果を検証するにあたり、これらの粉末試料を用いて以下に述べる複合磁性体を作製し、 $\mu - f$ 特性及び電磁干渉抑制効果を調べた。

【0052】 $\mu - f$ 特性の測定には、トロイダル形状に加工された複合磁性体試料を用いた。これを 1 ターンコイルを形成するテストフィックスチャに挿入し、インピーダンスを計測することにより、 μ' 及び μ'' を求めた。

【0053】一方、電磁干渉抑制効果の検証は、図 1 に示される評価系により行い、電磁干渉抑制体試料 10 として、銅板 8 が裏打ちされた厚さ 2 mm で一辺の長さが 20 cm の複合磁性体 2 を用いた。ここで、波源用素子及び受信用素子にはループ径 1.5 mm の微小ループアンテナ 4, 5 を用い、受信用素子に接続される信号源にはスイープジェネレータ（電磁界波源用発振器）6 を使用し、結合レベルの測定にはネットワークアナライザ（電磁界強度測定器）7 を使用した。

【0054】【検証用試料 1】以下の配合からなる軟磁性体ペーストを調合し、これをドクターブレード法により製膜し、熱プレスを施した後に 85 °C にて 24 時間キューリングを行い下記表 1 に示される検証用試料 1 を得た。

【0055】

【表 1】

扁平状軟磁性体(Fe-Al-Si合金)微粉末A・・・95重量部

平均粒径	: $\phi 20 \mu\text{m} \times 0.3 \mu\text{m}^t$
磁歪の大きさ	: +0.72
焼鈍処理	: なし
ポリウレタン樹脂	... 8重量部
硬化剤(イソシアネート化合物)	... 2重量部
溶剤(シクロヘキサンとトルエンの混合物)	... 40重量部

【0056】尚、得られた試料1を走査型電子顕微鏡を用いて解析したところ、粒子配列方向は試料膜面内方向であった。

【0057】ここで磁歪の大きさは、H=200エルステッドでの歪み量 $d_1 / 1 \times 10^{-6}$ の値であり、これは後述する検証用試料2乃至検証用試料4、及び比較用試料5及び比較用試料6についても同じである。

【0058】[検証用試料2]以下の配合からなる軟磁

扁平状軟磁性体(Fe-Al-Si合金)微粉末B	... 95重量部
平均粒径	: $\phi 20 \mu\text{m} \times 0.3 \mu\text{m}^t$
磁歪の大きさ	: +0.72
焼鈍処理	: 650°C × 2 hr
ポリウレタン樹脂	... 8重量部
硬化剤(イソシアネート化合物)	... 2重量部
溶剤(シクロヘキサンとトルエンの混合物)	... 40重量部

【0060】尚、得られた試料2を走査型電子顕微鏡を用いて解析したところ、粒子配列方向は試料膜面内方向であった。

【0061】[検証用試料3]以下の配合からなる軟磁性体ペーストを調合し、これをドクターブレード法により製膜し、熱プレスを施した後に85°Cにて24時間キ

ュアリングを行い下記表2に示される検証用試料2を得た。

【0059】

【表2】

扁平状軟磁性体(Fe-Ni合金)微粉末C	... 95重量部
平均粒径	: $\phi 30 \mu\text{m} \times 0.4 \mu\text{m}^t$
磁歪の大きさ	: -1.03
焼鈍処理	: なし
ポリウレタン樹脂	... 8重量部
硬化剤(イソシアネート化合物)	... 2重量部
溶剤(シクロヘキサンとトルエンの混合物)	... 40重量部

【0063】尚、得られた試料3を走査型電子顕微鏡を用いて解析したところ、粒子配列方向は試料膜面内方向であった。

【0064】[検証用試料4]以下の配合からなる軟磁性体ペーストを調合し、これをドクターブレード法により製膜し、熱プレスを施した後に85°Cにて24時間キ

ュアリングを行い下記表3に示される検証用試料3を得た。

【0062】

【表3】

ユアリングを行い下記表4に示される検証用試料4を得た。

【0065】

【表4】

扁平状軟磁性体 (Fe-Al-Si合金) 微粉末A・・・60重量部

平均粒径 : $\phi 20 \mu\text{m} \times 0.3 \mu\text{m}^t$

磁歪の大きさ : +0.72

焼鈍処理 : なし

扁平状軟磁性体 (Fe-Al-Si合金) 微粉末B・・・35重量部

平均粒径 : $\phi 20 \mu\text{m} \times 0.3 \mu\text{m}^t$

磁歪の大きさ : +0.72

焼鈍処理 : $650^\circ\text{C} \times 2\text{hr}$

ポリウレタン樹脂 : ・・・ 8重量部

硬化剤 (イソシアネート化合物) : ・・・ 2重量部

溶剤 (シクロヘキサンとトルエンの混合物) : ・・・ 40重量部

【0066】尚、得られた試料4を走査型電子顕微鏡を用いて解析したところ、粒子配列方向は試料膜面内方向であった。

【0067】【比較用試料5】以下の配合からなる軟磁性体ペーストを調合し、これをドクターブレード法により製膜し、熱プレスを施した後に 85°C にて24時間キ

略球状軟磁性体 (Fe-Al-Si合金) 微粉末D・・・95重量部

平均粒径 : $\phi 15 \mu\text{m}$

ポリウレタン樹脂 : ・・・ 8重量部

硬化剤 (イソシアネート化合物) : ・・・ 2重量部

溶剤 (シクロヘキサンとトルエンの混合物) : ・・・ 40重量部

【0069】尚、得られた試料5を走査型電子顕微鏡を用いて解析したところ、ほぼ等方的な配列であった。

【0070】【比較用試料6】以下の配合からなる軟磁性体ペーストを調合し、これをドクターブレード法により製膜し、熱プレスを施した後に 85°C にて24時間キ

扁平状軟磁性体 (Fe-Al-Si合金) 微粉末E・・・95重量部

平均粒径 : $\phi 20 \mu\text{m} \times 0.4 \mu\text{m}^t$

磁歪の大きさ : ほぼ0

ポリウレタン樹脂 : ・・・ 8重量部

硬化剤 (イソシアネート化合物) : ・・・ 2重量部

溶剤 (シクロヘキサンとトルエンの混合物) : ・・・ 40重量部

【0072】尚、得られた試料6を走査型電子顕微鏡を用いて解析したところ、粒子配列方向は試料膜面内方向であった。

【0073】得られた各試料の実部透磁率 μ' 及び磁気

ユアリングを行い下記表5に示される検証用試料5を得た。

【0068】

【表5】

ユアリングを行い下記表6に示される検証用試料6を得た。

【0071】

【表6】

共鳴周波数 f_r を下記表7に示す。

【0074】

【表7】

	粉末充填率	* 実部透磁率 μ'	共鳴周波数 f_r
検証用試料 1	30%	14	50MHz
検証用試料 2	29%	16	30MHz
検証用試料 3	33%	19	20MHz
比較用試料 5	53%	10	**10MHz
比較用試料 6	31%	17	25MHz

注) * $f = 10$ (MHz) での値。

** 明確な共鳴はみられず。

【0075】また、図2は、本発明の検証例である試料1乃至試料2及び比較例である試料6の $\mu - f$ 特性であり、磁気共鳴周波数 f_r は、正の磁歪定数 λ を有する磁性粉末を用いた試料1が最も高く、実部透磁率 μ' の値は磁歪定数 λ がほぼゼロである試料6が最も大きな値を示している。試料2は、試料1で用いた磁性粉末に焼純処理を施したものと原料粉末に用いたものであるが、図2から明らかな様に磁気共鳴周波数 f_r の値、及び実部透磁率 μ' の値ともに試料1と試料6の中間に位置している。

【0076】一方、前記表7から判るように、負の磁歪定数 λ を有する試料3では、磁気共鳴周波数 f_r が磁歪定数 λ がほぼゼロである試料6よりも更に低い周波数となっていると共に、実部透磁率 μ' の値も試料6より大きな値を示している。尚、いずれの場合でも略球状の原料磁性粉末を用いた比較用試料である試料5に比べて実部透磁率 μ' の差は歴然である。

【0077】これらの結果から、磁歪定数 λ をゼロでない値とし、更に焼純により残留歪み量をも変化させた事により、透磁率の周波数特性を広い範囲にて制御する事が出来、加えて磁性粉末の厚さを特定し、その表面に誘電体層を設けたことで、高周波域において高い透磁率が得られる事が明白である。

【0078】次に、検証用試料4及び比較用試料5について、それぞれの粉末充填率、表面抵抗、 μ'' 分布、及び電磁干渉抑制効果を比較した結果を下記表8に示す。

【0079】

【表8】

	検証用試料4	比較用試料5
粉末充填率	31%	53%
表面抵抗	$9 \times 10^7 \Omega$	$4 \times 10^7 \Omega$
μ'' 分布	広い	狭い
信号減衰量	800MHz 1.5GHz	6.5dB 7.7dB
		3.8dB 4.3dB

【0080】ここで、表面抵抗はASTM-D-257法による測定値であり、 μ'' 分布は互いを相対的に比較

したものであり、電磁干渉抑制効果の値は、銅板を基準(0dB)としたときの信号減衰量である。

【0081】前記表8より以下に述べる効果が明白である。

【0082】即ち、本発明の検証用試料及び比較用試料共、表面抵抗の値が $10^7 \sim 10^8 \Omega$ となっており、少なくとも表面が酸化された磁性粉末を用いる事によつて、複合磁性体を非良導性とする事が出来、導体やバルクの金属磁性体等にみられるようなインピーダンス不整合による電磁波の表面反射を抑制出来る。

【0083】更に、本発明の検証用試料では、粉末の充填率が比較用試料に比べて低いにもかかわらず良好な電磁干渉抑制効果を示しており、本発明による μ'' 分布の拡張効果が電磁干渉抑制に有効である事が理解出来る。

【0084】

【発明の効果】以上述べたように、本発明によれば、軟磁性体粉末と有機結合剤からなる複合磁性体に於いて、渦電流による透磁率特性の劣化を抑止出来る構成により高い実部透磁率を実現しつつ、磁歪定数 λ がゼロでない値の軟磁性体粉末を用い、更に焼純処理を組み合わせる事で、残留歪み量を変化させ高周波透磁率特性を広い範囲で制御する事が出来る。

【0085】また、本発明の一実施形態である異なる残留歪み量を有する複数の軟磁性体粉末からなる複合磁性体を用いた電磁干渉抑制体に於いては、異なる複数の磁気共鳴の出現により広帯域な μ'' 分散特性が得られるので、優れた電磁干渉抑制効果が現れている。即ち、本発明によれば、移動体通信機器をはじめとする高周波電子機器類内部での電磁波の干渉抑制に有効な薄厚の電磁干渉抑制体を得ることが出来る。

【0086】尚、本発明の複合磁性体及び電磁干渉抑制体は、その構成要素から判るように容易に可撓性を付与することが可能であり、複雑な形状への対応や、厳しい耐振動、衝撃要求への対応が可能である。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実施例において、電磁干渉抑制体の特性評価に用いた評価系を示す概略図である。

【図2】本発明の実施例において、検証用試料1乃至検証用試料2及び比較用試料6の条件にて作製した各試料

の $\mu - f$ 特性を示す図である。

【符号の説明】

2 複合磁性体
4, 5 微小ループアンテナ

6 電磁界波源用発信器
7 電磁界強度測定器
8 銅板
10 電磁干渉抑制体

フロントページの続き

(72)発明者 島田 寛
宮城県仙台市青葉区桜ヶ丘七丁目37番10号